

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017年12月7日(07.12.2017)



(10) 国際公開番号

WO 2017/208881 A1

(51) 国際特許分類:
B32B 27/30 (2006.01) G02F 1/1333 (2006.01)
G02B 5/30 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2017/019004

(22) 国際出願日: 2017年5月22日(22.05.2017)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2016-107817 2016年5月30日(30.05.2016) JP

(71) 出願人: 住友化学株式会社
(SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1048260 東京都中央区新川二丁目27番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 大松 一喜 (DAIMATSU, Kazuki); 〒7928521 愛媛県新居浜市惣開町5番1号 住友化学株式会社内 Ehime (JP). 大関 美保 (OZEKI, Miho); 〒3003294 茨城県つくば市北原6番住友化学株式会社内 Ibaraki (JP). 山下 恭弘 (YAMASHITA, Yasuhiro);

〒3003294 茨城県つくば市北原6番住友化学株式会社内 Ibaraki (JP).

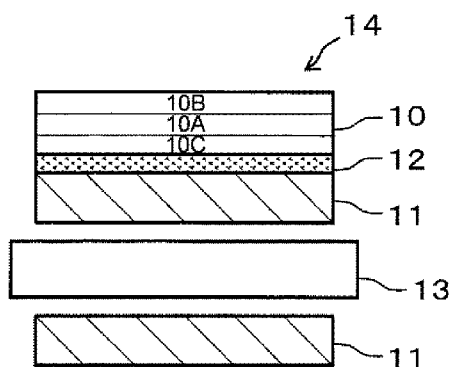
(74) 代理人: 中山 亨, 外(NAKAYAMA, Tohru et al.); 〒5418550 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号住友化学株式会社内 Osaka (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ,

(54) Title: RESIN LAMINATE, DISPLAY DEVICE AND POLARIZER

(54) 発明の名称: 樹脂積層体、表示装置及び偏光板



(57) Abstract: A resin laminate is provided which is suitable for use in a display device and which is not prone to warping. This resin laminate comprises at least an intermediate layer (A) and thermoplastic resin layers (B) and (C) which are present on both sides of the intermediate layer (A), wherein the intermediate layer (A) contains 10-90 mass% of a (meth)acrylic resin and 90-10 mass% of a vinylidene fluoride resin on the basis of all resins included in the intermediate layer (A), the weight average molecular weight of the (meth)acrylic resin is 100,000-300,000 and the thermoplastic resin layers (B) and (C) satisfy a specified relation.

(57) 要約: 表示装置において好適に使用される、反りの生じにくい樹脂積層体を提供する。中間層(A)と該中間層(A)の両側にそれぞれ存在する熱可塑性樹脂層(B)及び(C)とを少なくとも有する樹脂積層体であって、該中間層(A)は、該中間層(A)に含まれる全樹脂に基づいて、10~90質量%の(メタ)アクリル樹脂及び90~10質量%のフッ化ビニリデン樹脂を含み、該(メタ)アクリル樹脂の重量平均分子量は100,000~300,000であり、該熱可塑性樹脂層(B)及び(C)が特定の関係を満たす、樹脂積層体。



WO 2017/208881 A1

TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

- 一 国際調査報告（条約第21条(3)）

明 細 書

発明の名称：樹脂積層体、表示装置及び偏光板

技術分野

[0001] 本発明は、例えば表示装置において好適に使用される樹脂積層体、該樹脂積層体を含む表示装置、ならびに、該樹脂積層体及び偏光板が積層された樹脂積層体付き偏光板に関する。

背景技術

[0002] 近年、スマートフォン、携帯ゲーム機、オーディオプレーヤー、タブレット端末などの表示装置には、タッチスクリーンを備えるものが増加している。このような表示装置の表面には、通常ガラスシートが使用されているが、表示装置の軽量化や加工性の観点から、ガラスシートの代替品となるプラスチックシートが開発が行われている。例えば、特許文献1には、ガラスシートの代替品となるプラスチックシートとして、メタクリル樹脂とフッ化ビニリデン樹脂とを含む透明シートが開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2013-244604号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 表示装置はその高い汎用性から多様な環境下で使用されている。プラスチックシートを含む表示装置を例えば高温高湿等の過酷な環境下で使用すると、樹脂の膨張や収縮に伴って反りが生じることがある。近年、表示装置の薄型化が望まれており、反りはより大きな問題となっている。本発明は、表示装置において好適に使用される、反りの生じにくい樹脂積層体を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0005] 本発明者らは、上記課題を解決するために、表示装置において好適に使用

される樹脂積層体について詳細に検討を重ね、本発明を完成させるに至った。

[0006] すなわち、本発明は、以下の好適な態様を包含する。

[1] 中間層 (A) と該中間層 (A) の両側にそれぞれ存在する熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) とを少なくとも有する樹脂積層体であって、

該中間層 (A) は、該中間層 (A) に含まれる全樹脂に基づいて、10～90質量%の(メタ)アクリル樹脂及び90～10質量%のフッ化ビニリデン樹脂を含み、該(メタ)アクリル樹脂の重量平均分子量(Mw)は100,000～300,000であり、

該熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) が以下の関係を満たす、樹脂積層体。

$$\Delta L = |L_B - L_C| \leq 20 \mu m$$

$$\Delta \lambda_{BC} = |\Delta \lambda_B - \Delta \lambda_C| \leq 0.19 \times 10^{-4}$$

$$\Delta T = |T_B - T_C| \leq 4^\circ C$$

[式中、 L_B 及び L_C は、それぞれ、熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) の膜厚の平均値を表し、 $\Delta \lambda_B$ 及び $\Delta \lambda_C$ はそれぞれ次の式で表され、

$$\Delta \lambda_B = |\lambda'_B - \lambda_B|$$

$$\Delta \lambda_C = |\lambda'_C - \lambda_C|$$

上記式において、 λ'_B 及び λ'_C は、それぞれ、樹脂積層体における熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) について測定した複屈折 (I) を表し、 λ_B 及び λ_C は、それぞれ、熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) のピカット軟化温度より25℃低い温度で4時間のアニール処理後の樹脂積層体における熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) について測定した複屈折 (II) を表し、 T_B 及び T_C は、それぞれ、熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) のピカット軟化温度を表す。]

[2] 中間層 (A) は、該中間層 (A) に含まれる全樹脂に基づいて、35～45質量%の(メタ)アクリル樹脂及び65～55質量%のフッ化ビニリデン樹脂を含む、前記 [1] に記載の樹脂積層体。

[3] 中間層 (A) におけるアルカリ金属の含有量が、該中間層 (A) に含

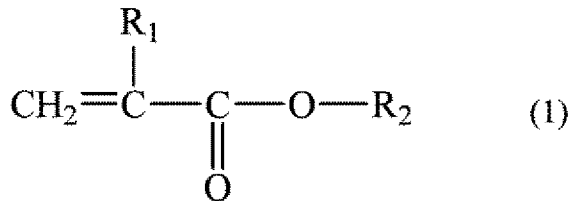
まれる全樹脂に基づいて50ppm以下である、前記[1]又は[2]に記載の樹脂積層体。

[4] (メタ)アクリル樹脂が、

(a1) メタクリル酸メチルの単独重合体、及び/又は

(a2) 重合体を構成する全構造単位に基づいて50~99.9質量%のメタクリル酸メチルに由来する構造単位、及び、0.1~50質量%の下記式(1)で示される(メタ)アクリル酸エステルに由来する少なくとも1つの構造単位を含む共重合体である、前記[1]~[3]のいずれかに記載の樹脂積層体。

[化1]



[式中、R₁は水素原子又はメチル基を表し、R₁が水素原子のときR₂は炭素数1~8のアルキル基を表し、R₁がメチル基のときR₂は炭素数2~8のアルキル基を表す。]

[5] フッ化ビニリデン樹脂はポリフッ化ビニリデンである、前記[1]~[4]のいずれかに記載の樹脂積層体。

[6] フッ化ビニリデン樹脂のメルトマスフローレイトは、3.8kg荷重及び230℃の条件で測定して、0.1~40g/10分である、前記[1]~[5]のいずれかに記載の樹脂積層体。

[7] 樹脂積層体の膜厚の平均値が100~2000μmであり、熱可塑性樹脂層(B)及び(C)の膜厚の平均値がそれぞれ10~200μmである前記[1]~[6]のいずれかに記載の樹脂積層体。

[8] 熱可塑性樹脂層(B)及び(C)に含まれる熱可塑性樹脂のビカット軟化温度がそれぞれ100~160℃である、前記[1]~[7]のいずれかに記載の樹脂積層体。

[9] 熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) は (メタ) アクリル樹脂層又はポリカーボネート樹脂層である、前記 [1] ~ [8] のいずれかに記載の樹脂積層体。

[1 0] 熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) はポリカーボネート樹脂層であり、それぞれの熱可塑性樹脂層に含まれる全樹脂に基づいて 0. 0 0 5 ~ 2. 0 質量%の紫外線吸収剤を含む、前記 [1] ~ [9] のいずれかに記載の樹脂積層体。

[1 1] 熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) は、それぞれの熱可塑性樹脂層に含まれる全樹脂に基づいて 5 0 質量%以上の (メタ) アクリル樹脂を含む、前記 [1] ~ [9] のいずれかに記載の樹脂積層体。

[1 2] 熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) に含まれる (メタ) アクリル樹脂の重量平均分子量が 5 0, 0 0 0 ~ 3 0 0, 0 0 0 である、前記 [1 1] に記載の樹脂積層体。

[1 3] 前記 [1] ~ [1 2] のいずれかに記載の樹脂積層体を含む表示装置。

[1 4] 前記 [1] ~ [1 2] のいずれかに記載の樹脂積層体及び偏光板が積層された樹脂積層体付き偏光板。

[1 5] 前記 [1 4] に記載の樹脂積層体付き偏光板を含む表示装置。

発明の効果

[0007] 本発明の樹脂積層体は、例えば高温高湿等の環境下で使用しても反りが生じにくく、表示装置等において好適に使用される。

図面の簡単な説明

[0008] [図1]実施例に使用した本発明の樹脂積層体の製造装置の概略図である。

[図2]本発明の樹脂積層体を含む液晶表示装置の好ましい一形態を示す断面模式図である。

発明を実施するための形態

[0009] 本発明の樹脂積層体は、中間層 (A) と該中間層 (A) の両側にそれぞれ存在する熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) とを少なくとも有する。言い換え

ると、本発明の樹脂積層体は、熱可塑性樹脂層（B）／中間層（A）／熱可塑性樹脂層（C）がこの順に積層された構成を少なくとも有する。

[0010] 中間層（A）は、該中間層（A）に含まれる全樹脂に基づいて、10～90質量%の（メタ）アクリル樹脂及び90～10質量%のフッ化ビニリデン樹脂を含む。（メタ）アクリル樹脂の量が上記の下限より低い場合、十分な透明性が得られず、（メタ）アクリル樹脂の量が上記の上限より高い場合、十分な誘電率が得られない。フッ化ビニリデン樹脂の量が上記の下限より低い場合、十分な誘電率が得られず、フッ化ビニリデン樹脂の量が上記の上限より高い場合、耐久性や十分な透明性が得られない。

[0011] 中間層（A）は、誘電率を高め、樹脂積層体の透明性を高めやすい観点から、該中間層（A）に含まれる全樹脂に基づいて、30～60質量%の（メタ）アクリル樹脂及び70～40質量%のフッ化ビニリデン樹脂を含むことが好ましく、35～45質量%の（メタ）アクリル樹脂及び65～55質量%のフッ化ビニリデン樹脂を含むことがより好ましく、37～45質量%の（メタ）アクリル樹脂及び63～55質量%のフッ化ビニリデン樹脂を含むことがさらにより好ましく、38～45質量%の（メタ）アクリル樹脂及び62～55質量%のフッ化ビニリデン樹脂を含むことが特に好ましく、38～43質量%の（メタ）アクリル樹脂及び62～57質量%のフッ化ビニリデン樹脂を含むことが極めて好ましい。

[0012] 本発明の樹脂積層体の中間層（A）に含まれる（メタ）アクリル樹脂としては、例えば、（メタ）アクリル酸エステル及び（メタ）アクリロニトリル等の（メタ）アクリルモノマーの単独重合体、2種以上の（メタ）アクリルモノマーの共重合体、（メタ）アクリルモノマーと（メタ）アクリルモノマー以外のモノマーとの共重合体などが挙げられる。なお、本明細書において、用語「（メタ）アクリル」とは、「アクリル」又は「メタクリル」を意味する。

[0013] （メタ）アクリル樹脂は、樹脂積層体の硬度、耐候性及び透明性を高めやすい観点から、メタクリル樹脂であることが好ましい。メタクリル樹脂は、

メタクリル酸エステル（メタクリル酸アルキルとも言う）を主体とする単量体の重合体であり、例えば、メタクリル酸エステルの単独重合体（ポリアルキルメタクリレートとも言う）、2種以上のメタクリル酸エステルの共重合体、50質量%以上のメタクリル酸エステルと50質量%以下のメタクリル酸エステル以外の単量体との共重合体などが挙げられる。メタクリル酸エステルとメタクリル酸エステル以外の単量体との共重合体としては、光学特性及び耐候性を向上させやすい観点から、単量体の総量に対し、70質量%以上のメタクリル酸エステルと30質量%以下の他の単量体との共重合体が好ましく、90質量%以上のメタクリル酸エステルと10質量%以下の他の単量体との共重合体がより好ましい。

[0014] メタクリル酸エステル以外の単量体としては、アクリル酸エステル、分子内に重合性の炭素-炭素二重結合を1個有する単官能単量体が挙げられる。

[0015] 単官能単量体としては、例えば、スチレン、 α -メチルスチレン及びビニルトルエン等のスチレン単量体；アクリロニトリル及びメタクリロニトリル等のシアン化アルケニル；アクリル酸；メタクリル酸；無水マレイン酸；N-置換マレイミド；などが挙げられる。

[0016] （メタ）アクリル樹脂には、耐熱性の観点より、フェニルマレイミド、シクロヘキシルマレイミド及びメチルマレイミド等のN-置換マレイミドが共重合されていてもよいし、分子鎖中（重合体中の主骨格中又は主鎖中ともいう）にラクトン環構造、グルタル酸無水物構造、若しくはグルタルイミド構造等が導入されていてもよい。

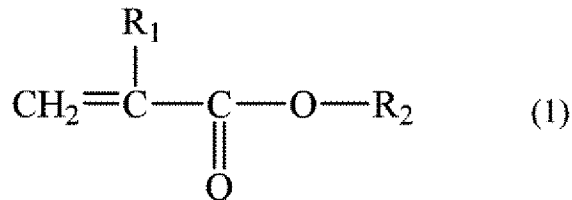
[0017] （メタ）アクリル樹脂は、樹脂積層体の硬度、耐候性及び透明性を高めやすい観点から、具体的には、

（a1）メタクリル酸メチルの単独重合体、及び／又は

（a2）共重合体を構成する全構造単位に基づいて50～99.9質量%、好ましくは70.0～99.8質量%、より好ましくは80.0～99.7質量%のメタクリル酸メチルに由来する構造単位、及び、0.1～50質量%、好ましくは0.2～30質量%、より好ましくは0.3～20質量%の下

記式(1)で示される(メタ)アクリル酸エステルに由来する少なくとも1つの構造単位を含む共重合体であることが好ましい。ここで、各構造単位の含有量は、得られた重合体を熱分解ガスクロマトグラフィーにより分析し、各単量体に対応するピーク面積を測定することにより算出できる。

[化2]



[式中、R₁は水素原子又はメチル基を表し、R₁が水素原子のときR₂は炭素数1～8のアルキル基を表し、R₁がメチル基のときR₂は炭素数2～8のアルキル基を表す。]

[0018] 式(1)において、R₁は水素原子又はメチル基を表し、R₁が水素原子のときR₂は炭素数1～8のアルキル基を表し、R₁がメチル基のときR₂は炭素数2～8のアルキル基を表す。炭素数2～8のアルキル基としては、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基などが挙げられる。R₂は、耐熱性の観点から、炭素数2～4のアルキル基であることが好ましく、エチル基であることがより好ましい。

[0019] 中間層(A)に含まれる(メタ)アクリル樹脂の重量平均分子量(以下、M_wと記すことがある。)は100,000～300,000である。M_wが上記の下限より低いと、高温高湿環境下に暴露したときの透明性が十分でなく、M_wが上記の上限より高いと、樹脂積層体を製造する際の成膜性が得られない。(メタ)アクリル樹脂のM_wは、高温高湿環境下に暴露したときの透明性を高めやすい観点から、120,000以上であることが好ましく、150,000以上であることがより好ましい。(メタ)アクリル樹脂のM_wは、樹脂積層体を製造する際の成膜性の観点から、250,000以下であることが好ましく、200,000以下であることがより好ましい。重量平均分子

量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）測定により測定される。

[0020] （メタ）アクリル樹脂は、3.8 kg 荷重及び230℃の条件で測定して、通常0.1～20 g / 10分、好ましくは0.2～5 g / 10分、より好ましくは0.5～3 g / 10分のメルトマスフローレイト（以下、MFRと記すことがある。）を有する。MFRは上記の上限以下であることが、得られる膜の強度を高めやすいため好ましく、上記の下限以上であることが、樹脂積層体の成膜性の観点から好ましい。MFRは、JIS K 7210:1999「プラスチック—熱可塑性プラスチックのメルトマスフローレイト（MFR）及びメルトボリュームフローレイト（MVR）の試験方法」に規定される方法に準拠して測定することができる。ポリ（メタクリル酸メチル）系の材料については、温度230℃及び荷重3.80 kg（37.3 N）の条件で測定することが、このJISに規定されている。

[0021] （メタ）アクリル樹脂は、耐熱性の観点から、好ましくは90℃以上、より好ましくは100℃以上、さらにより好ましくは102℃以上のビカット軟化温度（以下、VSTと記すことがある。）を有する。VSTの上限は、特に限定されないが、通常150℃以下である。VSTは、JIS K 7206:1999に準拠し、これに記載のB50法で測定することができる。VSTは、単量体の種類やその割合を調整することにより、上記の範囲に調整することができる。

[0022] （メタ）アクリル樹脂は、上記の単量体を、懸濁重合、バルク重合等の公知の方法により重合させることにより、調製することができる。その際、適当な連鎖移動剤を添加することにより、MFR、Mw、VSTなどを好ましい範囲に調整することができる。連鎖移動剤は、適宜の市販品を使用することができる。連鎖移動剤の添加量は、単量体の種類やその割合、求める特性等に応じて適宜決定すればよい。

[0023] 本発明の樹脂積層体の中間層（A）に含まれるフッ化ビニリデン樹脂としては、フッ化ビニリデンの単独重合体、フッ化ビニリデンと他の単量体との

共重合体が挙げられる。フッ化ビニリデン樹脂は、得られる樹脂積層体の透明性を高めやすい観点から、トリフルオロエチレン、テトラフルオロエチレン、ヘキサフルオロプロピレン、クロロトリフルオロエチレン、パーフルオロアルキルビニルエーテル及びエチレンからなる群から選択される少なくとも1種の単量体とフッ化ビニリデンとの共重合体、及び／又は、フッ化ビニリデンの単独重合体（ポリフッ化ビニリデン）であることが好ましく、ポリフッ化ビニリデンであることがより好ましい。

[0024] 中間層（A）に含まれるフッ化ビニリデン樹脂の重量平均分子量（Mw）は、好ましくは100,000～500,000、より好ましくは150,000～450,000、さらにより好ましくは200,000～450,000、特に好ましくは350,000～450,000である。Mwが上記の下限以上であることが、本発明の樹脂積層体を高温高湿の環境下（例えば60℃、相対湿度90%）に暴露したときに、樹脂積層体の透明性を高めやすいため好ましい。また、Mwが上記の上限以下であることが、樹脂積層体の成膜性を高めやすいため好ましい。重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）測定により測定される。

[0025] フッ化ビニリデン樹脂は、3.8kg荷重及び230℃の条件で測定して、好ましくは0.1～40g/10分、より好ましくは0.1～30g/10分、さらにより好ましくは0.1～25g/10分のメルトマスフローレイト（MFR）を有する。MFRは、より好ましくは0.2g/10分以上であり、さらにより好ましくは0.5g/10分以上である。また、MFRは、より好ましくは20g/10分以下であり、さらにより好ましくは5g/10分以下であり、特に好ましくは2g/10分以下である。MFRが上記の上限以下であることが、樹脂積層体を長期間使用したときの透明性の低下を抑制しやすいため好ましい。MFRが上記の下限以上であることが、樹脂積層体の成膜性を高めやすいため好ましい。MFRは、JIS K 7210:1999「プラスチック—熱可塑性プラスチックのメルトマスフローレイト（MFR）及びメルトボリュームフローレイト（MVR）の試験方法」に規定される

方法に準拠して測定することができる。

[0026] フッ化ビニリデン樹脂は、工業的には、懸濁重合法又は乳化重合法により製造される。懸濁重合法は、水を媒体とし、単量体を分散剤で媒体中に液滴として分散させ、単量体中に溶解した有機過酸化物を重合開始剤として重合させることにより実施され、100～300 μmの粒状の重合体を得られる。懸濁重合物は、乳化重合物に比較し製造工程が簡単で、粉体の取扱性に優れ、また乳化重合物のようにアルカリ金属を含む乳化剤や塩析剤を含まないため好ましい。

[0027] フッ化ビニリデン樹脂は、市販品を使用してもよい。好ましい市販品の例としては、株式会社クレハの「KFポリマー（登録商標）T#1300、T#1100、T#1000、T#850、W#850、W#1000、W#1100及びW#1300」、Solvay社製の「SOLEF（登録商標）6012、6010及び6008」が挙げられる。

[0028] 中間層（A）は、（メタ）アクリル樹脂及びフッ化ビニリデン樹脂とは異なる他の樹脂をさらに含んでもよい。他の樹脂を含有する場合、樹脂積層体の透明性を著しく損なわない限り、その種類は特に限定されない。樹脂積層体の硬度及び耐候性の観点から、他の樹脂の量は、該中間層（A）に含まれる全樹脂に基づいて、15質量%以下であることが好ましく、10質量%以下であることがより好ましく、5質量%以下であることがさらに好ましい。他の樹脂としては、例えばポリカーボネート樹脂、ポリアミド樹脂、アクリルニトリル-スチレン共重合体、メタクリル酸メチル-スチレン共重合体、ポリエチレンテレフタレートなどが挙げられる。中間層（A）が他の樹脂をさらに含んでもよいが、透明性の観点からは、他の樹脂の量は1質量%以下であることが好ましく、中間層（A）に含まれる樹脂が（メタ）アクリル樹脂及びフッ化ビニリデン樹脂のみであることがより好ましい。

[0029] 中間層（A）におけるアルカリ金属の含有量は、中間層（A）に含まれる全樹脂に基づいて、好ましくは50 ppm以下、より好ましくは30 ppm以下、さらに好ましくは10 ppm以下、特に好ましくは1 ppm以下

である。中間層（A）におけるアルカリ金属の含有量が上記の上限以下であることが、樹脂積層体を高温高湿環境下で長期間使用したときの透明性の低下を抑制しやすいため好ましい。中間層（A）におけるアルカリ金属の含有量の下限値は0であり、樹脂積層体の透明性の低下を抑制しやすい観点からは、実質的に含まれないことが極めて好ましい。ここで、中間層（A）に含まれる（メタ）アクリル樹脂及び／又はフッ化ビニリデン樹脂中には、製造工程で使用した微量の乳化剤等が残留する。そのため、残留する乳化剤に由来してナトリウムやカリウムなどのアルカリ金属が、例えば0.05 ppm以上、中間層（A）に含まれる。特に中間層（A）に含まれる（メタ）アクリル樹脂及び／又はフッ化ビニリデン樹脂が乳化重合により得たものである場合、樹脂中に残留する乳化剤の量が多くなり、中間層（A）におけるアルカリ金属の含有量も高くなる。樹脂積層体の透明性の低下を抑制しやすい観点からは、中間層（A）に含まれる（メタ）アクリル樹脂及びフッ化ビニリデン樹脂として、アルカリ金属の含有量が少ない樹脂を使用することが好ましい。

[0030] 樹脂中のアルカリ金属の含有量を上記範囲内にするためには、樹脂の重合の際にアルカリ金属を含む化合物の使用量を減らすか、重合後の洗浄工程を増やしてアルカリ金属を含む化合物を除去すればよい。アルカリ金属の含有量は、例えば、誘導結合プラズマ質量分析法（ICP/MS）により求めることができる。誘導結合プラズマ質量分析法としては、例えば、測定するサンプルペレットを、高温灰化融解法、高温灰化酸溶解法、Ca添加灰化酸溶解法、燃焼吸収法、低温灰化酸溶解法などの適宜の方法により、サンプルを灰化し、これを酸に溶解にさせ、この溶解液を定容して誘導結合プラズマ質量分析法でアルカリ金属の含有量を測定すればよい。

[0031] 本発明の樹脂積層体は、中間層（A）の両側にそれぞれ存在する熱可塑性樹脂層（B）及び（C）とを少なくとも有する。熱可塑性樹脂層（B）と熱可塑性樹脂層（C）とは、同一の層であってもよいし、互いに異なる層であってもよい。

[0032] 熱可塑性樹脂層（B）及び（C）は、少なくとも1種の熱可塑性樹脂を含む。熱可塑性樹脂層（B）及び（C）は、成形加工性を高めやすい観点から、それぞれの熱可塑性樹脂層に含まれる全樹脂に基づいて、好ましくは60質量%以上、より好ましくは70質量%以上、さらにより好ましくは80質量%以上の熱可塑性樹脂を含む。熱可塑性樹脂の量の上限は、100質量%である。熱可塑性樹脂としては、（メタ）アクリル樹脂、ポリカーボネート樹脂、シクロオレフィン樹脂などが挙げられる。熱可塑性樹脂は、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）と中間層（A）との接着性を高めやすい観点から、（メタ）アクリル樹脂又はポリカーボネート樹脂であることが好ましい。熱可塑性樹脂層（B）及び（C）は、同一の熱可塑性樹脂を含んでもよいし、互いに異なる熱可塑性樹脂を含んでもよい。熱可塑性樹脂層（B）及び（C）は、同一の熱可塑性樹脂を含むことが、樹脂積層体の反りを抑制しやすい観点から好ましい。

[0033] 熱可塑性樹脂層（B）及び（C）に含まれる熱可塑性樹脂は、樹脂積層体の耐熱性の観点から、JIS K 7206：1999に準拠して測定して、好ましくは100～160℃、より好ましくは102～155℃、さらにより好ましくは102～152℃であるビカット軟化温度を有する。ここで、上記のビカット軟化温度は、熱可塑性樹脂層が1種の熱可塑性樹脂を含む場合は、その樹脂のビカット軟化温度であり、熱可塑性樹脂層が2種以上の熱可塑性樹脂を含む場合は、複数の熱可塑性樹脂の混合物のビカット軟化温度である。

[0034] 熱可塑性樹脂層（B）及び（C）は、熱可塑性樹脂層の強度や弾性等を高める目的で、熱可塑性樹脂以外の他の樹脂（例えばフィラーや樹脂粒子などの熱硬化性樹脂）をさらに含んでもよい。この場合、他の樹脂の量は、それぞれの熱可塑性樹脂層に含まれる全樹脂に基づいて、好ましくは40質量%以下、より好ましくは30質量%以下、さらにより好ましくは20質量%以下である。他の樹脂の量の下限は0質量%である。

[0035] 本発明の樹脂積層体において熱可塑性樹脂層（B）及び（C）は、以下の

関係を満たす。

$$\Delta L = |L_B - L_C| \leq 20 \mu m$$

[式中、 L_B 及び L_C は、それぞれ、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）の膜厚の平均値を表す。]

[0036] ΔL は、本発明の樹脂積層体の反りを抑制しやすい観点から、 $17 \mu m$ 以下であることが好ましく、 $15 \mu m$ 以下であることがより好ましい。 ΔL は、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）の膜厚の平均値の差を意味し、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）のそれぞれの膜厚を調整することにより ΔL を上記範囲内にすることができる。ここで、熱可塑性樹脂層の膜厚は、マイクロスコープ（例えばマイクロ・スクエア株式会社製のマイクロスコープ）を用いて測定される。上記測定を熱可塑性樹脂層の任意の10点において行って得た値の平均値を膜厚の平均値とする。なお、 ΔL は絶対値であるため、その下限値は $0 \mu m$ である。

[0037] 本発明の樹脂積層体において熱可塑性樹脂層（B）及び（C）はさらに、以下の関係を満たす。

$$\Delta \lambda_{BC} = |\Delta \lambda_B - \Delta \lambda_C| \leq 0.19 \times 10^{-4}$$

[式中、 $\Delta \lambda_B$ 及び $\Delta \lambda_C$ はそれぞれ下記の式で表され、下記の式中、 λ'_B 及び λ'_C は、それぞれ、樹脂積層体における熱可塑性樹脂層（B）及び（C）について測定した複屈折（I）を表し、 λ_B 及び λ_C は、それぞれ、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）のピカット軟化温度より $25^\circ C$ 低い温度で4時間のアニール処理後の樹脂積層体における熱可塑性樹脂層（B）及び（C）について測定した複屈折（II）を表す。]

$$\Delta \lambda_B = |\lambda'_B - \lambda_B|$$

$$\Delta \lambda_C = |\lambda'_C - \lambda_C|$$

[0038] 本明細書における λ'_B 及び λ'_C に関し、樹脂積層体における熱可塑性樹脂層（B）及び（C）について測定した複屈折（I）は、樹脂積層体における熱可塑性樹脂層（B）又は（C）の波長 $590 nm$ における位相差（R）を自動複屈折計（例えば王子計測株式会社製「KOBRA-CCD」）を用

いて測定し、得られた位相差から、次の式により算出される複屈折 (λ) である。

$$\lambda = R / L$$

[式中、 λ は複屈折を表し、 R は波長590nmにおける位相差を表し、 L は位相差測定用試料の短辺の長さ (nm) を表す。]

[0039] 本明細書における λ_B 及び λ_C に関し、熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) のピカット軟化温度より25℃低い温度で4時間のアニール処理後の樹脂積層体における熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) について測定した複屈折 (λ) は、アニール処理後の樹脂積層体を用いて、熱可塑性樹脂層 (B) 又は (C) の波長590nmにおける位相差 (R) を自動複屈折計 (例えば王子計測株式会社製「KOBRA-CCD」) を用いて測定し、得られた位相差から、下記の式により算出される複屈折 (λ) である。なお、上記アニール処理は、樹脂積層体を、熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) のピカット軟化温度より25℃低い温度で4時間放置する処理であり、熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) のピカット軟化温度が互いに異なる場合には、高い方のピカット軟化温度より25℃低い温度でアニール処理を行う。

$$\lambda = R / L$$

[式中、 λ は複屈折を表し、 R は波長590nmにおける位相差を表し、 L は位相差測定用試料の短辺の長さ (nm) を表す。]

[0040] 熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) が (メタ) アクリル樹脂層である本発明の一態様において、 $\Delta\lambda_B$ 及び $\Delta\lambda_C$ はそれぞれ、本発明の樹脂積層体の反りを抑制しやすい観点から、 0.16×10^{-4} 以下であることが好ましく、 0.15×10^{-4} 以下であることがより好ましい。熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) がポリカーボネート樹脂層である本発明の別の態様において、 $\Delta\lambda_B$ 及び $\Delta\lambda_C$ はそれぞれ、同様の観点から、 0.61×10^{-4} 以下であることが好ましく、 0.60×10^{-4} 以下であることがより好ましい。 $\Delta\lambda_B$ 及び $\Delta\lambda_C$ は、それぞれ、樹脂積層体における熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) の複屈折 (λ) と、樹脂積層体に上記アニール処理を施すことにより、熱可塑性樹

脂層（B）及び（C）において成形時に生じた配向固有複屈折を取り除いた後で測定した熱可塑性樹脂層（B）及び（C）の複屈折（ l_l ）との差を意味する。この差が大きいことは、各層を成形する際に生じる樹脂の高分子配列の歪みが大きいことを表す。 $\Delta\lambda_B$ 及び $\Delta\lambda_C$ は、樹脂積層体の製造時の冷却速度を調整することにより、上記範囲内にすることができる。なお、 $\Delta\lambda_B$ 及び $\Delta\lambda_C$ は絶対値であるため、その下限値は0である。

[0041] $\Delta\lambda_{BC}$ は、本発明の樹脂積層体の反りを抑制しやすい観点から、 0.18×10^{-4} 以下であることが好ましい。 $\Delta\lambda_{BC}$ は、熱可塑性樹脂層（B）における複屈折（ l_l ）と複屈折（ l ）の差から、熱可塑性樹脂層（C）における複屈折（ l_l ）と複屈折（ l ）の差を引いた絶対値でありこの値が大きいことは、成形加工時に生じる歪みの程度の違いが熱可塑性樹脂層（B）と熱可塑性樹脂層（C）との間で大きいことを表す。 $\Delta\lambda_{BC}$ は、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）に含まれる樹脂の種類や量、冷却速度を調整することにより、上記範囲内にすることができる。 $\Delta\lambda_{BC}$ は絶対値であるため、その下限値は0である。

[0042] 樹脂積層体が高分子配列の歪みが特定の範囲内である熱可塑性樹脂層（B）及び（C）を有することが、本発明の樹脂積層体を高温高湿等の条件下で使用しても反りが生じにくい一因であると考えられる。

[0043] 本発明の樹脂積層体において熱可塑性樹脂層（B）及び（C）はさらに、以下の関係を満たす。

$$\Delta T = |T_B - T_C| \leq 4^\circ\text{C}$$

[式中、 T_B 及び T_C は、それぞれ、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）のピカット軟化温度を表す。]

[0044] ΔT は、本発明の樹脂積層体の反りを抑制しやすい観点から、 3°C 以下であることが好ましく、 2°C 以下であることがより好ましく、 1°C 以下であることがさらにより好ましく、 0°C であることが極めて好ましい。 ΔT は、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）のピカット軟化温度の差を意味し、この差が大きいことは、歪みの緩和速度の差が大きいことを表す。 ΔT は熱可塑性樹

脂層（B）及び（C）に含まれる樹脂の種類や組成を調整することにより上記範囲内にすることができる。ここで、熱可塑性樹脂層のビカット軟化温度は、JIS K 7206：1999「プラスチック—熱可塑性プラスチック—ビカット軟化温度（VST）試験方法」に規定のB50法に準拠して測定される。ビカット軟化温度は、ヒートディストーションテスター（例えば、株式会社安田精機製作所製「148-6連型」）を用いて測定することができる。測定は、各原料を3mm厚にプレス成形した試験片を用いて行ってよい。なお、 ΔT は絶対値であるため、その下限値は0である。

[0045] 熱可塑性樹脂層（B）及び（C）は、成形加工性が良好であり、中間層（A）との密着性を高めやすい観点から、好ましくは（メタ）アクリル樹脂層又はポリカーボネート樹脂層である。

[0046] 熱可塑性樹脂層（B）及び（C）が（メタ）アクリル樹脂層である本発明の一態様について以下に説明する。この態様において、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）は1種以上の（メタ）アクリル樹脂を含む。熱可塑性樹脂層（B）及び（C）は、表面硬度の観点から、それぞれの熱可塑性樹脂層に含まれる全樹脂に基づいて好ましくは50質量%以上、より好ましくは60質量%以上、さらにより好ましくは70質量%以上の（メタ）アクリル樹脂を含む。

[0047] （メタ）アクリル樹脂としては、中間層（A）に含まれる（メタ）アクリル樹脂について記載した樹脂が挙げられる。中間層（A）について記載した好ましい（メタ）アクリル樹脂は、特記しない限り、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）に含まれる（メタ）アクリル樹脂としても同様に好ましい。熱可塑性樹脂層（B）及び（C）に含まれる（メタ）アクリル樹脂と、中間層（A）に含まれる（メタ）アクリル樹脂とは同一であってもよいし、異なってもよい。

[0048] （メタ）アクリル樹脂の重量平均分子量（Mw）は、成形加工性が良好であり、力学強度を高めやすい観点から、好ましくは50,000～300,000であり、より好ましくは70,000～250,000である。重量平均

分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）測定により測定される。

[0049] この態様において、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）はさらに、1種以上の（メタ）アクリル樹脂以外の熱可塑性樹脂を含んでもよい。（メタ）アクリル樹脂以外の熱可塑性樹脂としては、（メタ）アクリル樹脂と相溶する熱可塑性樹脂が好ましい。具体的には、メタクリル酸メチルースチレンー無水マレイン酸共重合体（例えば電気化学工業製「レジスファイ」）やメタクリル酸メチルーメタクリル酸共重合体（例えばアルケマ製「アルトグラスHT121」）、ポリカーボネート樹脂が挙げられる。（メタ）アクリル樹脂以外の熱可塑性樹脂は、耐熱性の観点から、JIS K 7206:1999に準拠して測定して好ましくは115℃以上、より好ましくは117℃以上、さらにより好ましくは120℃以上のピカット軟化温度を有することが好ましい。なお、耐熱性及び表面硬度の観点から、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）は、実質的にフッ化ビニリデン樹脂を含まないことが好ましい。

[0050] この態様において、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）の鉛筆硬度は、耐傷つき性を高める観点から、HB以上であることが好ましく、F以上であることがより好ましく、H以上であることがさらにより好ましい。

[0051] 次に、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）がポリカーボネート樹脂層である本発明の別の態様について以下に説明する。この態様において、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）は1種以上のポリカーボネート樹脂を含む。熱可塑性樹脂層（B）及び（C）は、耐衝撃性の観点から、それぞれの熱可塑性樹脂層に含まれる全樹脂に基づいて好ましくは60質量%以上、より好ましくは70質量%以上、さらにより好ましくは80質量%以上のポリカーボネート樹脂を含む。

[0052] ポリカーボネート樹脂としては、例えば、種々のジヒドロキシジアリール化合物とホスゲンとを反応させるホスゲン法、又は、ジヒドロキシジアリール化合物とジフェニルカーボネート等の炭酸エステルとを反応させるエステル交換法によって得られる重合体が挙げられ、具体的には、2,2-ビス（

4-ヒドロキシフェニル)プロパン(通称ビスフェノールA)から製造されたポリカーボネート樹脂が挙げられる。

[0053] 上記ジヒドロキシジアリール化合物としては、ビスフェノールAの他に、ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタン、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ブタン、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)オクタン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)フェニルメタン、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル-3-メチルフェニル)プロパン、1,1-ビス(4-ヒドロキシ-3-第三ブチルフェニル)プロパン、2,2-ビス(4-ヒドロキシ-3-ブロモフェニル)プロパン、2,2-ビス(4-ヒドロキシ-3,5-ジブロモフェニル)プロパン、2,2-ビス(4-ヒドロキシ-3,5-ジクロロフェニル)プロパンのようなビス(ヒドロキシアリール)アルカン類、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロペンタン、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサンのようなビス(ヒドロキシアリール)シクロアルカン類、4,4'-ジヒドロキシジフェニルエーテル、4,4'-ジヒドロキシ-3,3'-ジメチルジフェニルエーテルのようなジヒドロキシジアリールエーテル類、4,4'-ジヒドロキシジフェニルスルフィドのようなジヒドロキシジアリールスルフィド類、4,4'-ジヒドロキシジフェニルスルホキシド、4,4'-ジヒドロキシ-3,3'-ジメチルジフェニルスルホキシドのようなジヒドロキシジアリールスルホキシド類、4,4'-ジヒドロキシジフェニルスルホン、4,4'-ジヒドロキシ-3,3'-ジメチルジフェニルスルホンのようなジヒドロキシジアリールスルホン類が挙げられる。

[0054] これらは単独又は2種以上を混合して使用されるが、これらの他に、ピペラジン、ジピペリジルハイドロキノン、レゾルシン、4,4'-ジヒドロキシジフェニル等を混合して使用してもよい。

[0055] さらに、上記のジヒドロキシアリール化合物と以下に示すような3個以上のフェノール化合物を混合使用してもよい。3個以上のフェノールとしてはフロログルシン、4,6-ジメチル-2,4,6-トリ- (4-ヒドロキシ

フェニル) -ヘプテン、2, 4, 6-ジメチル-2, 4, 6-トリ- (4-ヒドロキシフェニル) -ヘプタン、1, 3, 5-トリ- (4-ヒドロキシフェニル) -ベンゾール、1, 1, 1-トリ- (4-ヒドロキシフェニル) -エタン及び2, 2-ビス- [4, 4- (4, 4'-ジヒドロキシジフェニル) -シクロヘキシル] -プロパンなどが挙げられる。

[0056] 上記ポリカーボネート樹脂以外のポリカーボネート樹脂として、イソソルバイトと芳香族ジオールから合成されるポリカーボネートが挙げられる。該ポリカーボネートの例として、三菱化学製「DURABIO (商標登録)」が挙げられる。

[0057] ポリカーボネート樹脂として市販品を使用してもよく、例えば、住化スタイロンポリカーボネート株式会社製「カリバー (登録商標) 301-4、301-10、301-15、301-22、301-30、301-40、SD2221W、SD2201W、TR2201」などが挙げられる。

[0058] この態様において、ポリカーボネート樹脂の重量平均分子量 (Mw) は、耐衝撃性及び成形加工性を高めやすい観点から、好ましくは20,000~70,000であり、より好ましくは25,000~60,000である。重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) 測定により測定される。

[0059] この態様において、熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) に含まれるポリカーボネート樹脂は、温度300℃及び荷重1.2kgの条件で測定して、好ましくは3~120cm³/10分、より好ましくは3~80cm³/10分、さらにより好ましくは4~40cm³/10分、特に好ましくは10~40cm³/10分のメルトポリリュームレイト (以下、MVRとも言う。) を有する。MVRが上記の下限より高いと、流動性が十分高く、溶融共押出成形などにおいて成形加工しやすく、外観不良が生じにくいいため好ましい。MVRが上記の上限より低いと、ポリカーボネート樹脂層の強度等の機械特性を高めやすいため好ましい。MVRは、JIS K 7210に準拠し、1.2kgの荷重下、300℃の条件にて測定することができる。

- [0060] この態様において、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）は、さらに、1種以上のポリカーボネート樹脂以外の熱可塑性樹脂を含んでよい。ポリカーボネート樹脂以外の熱可塑性樹脂としては、ポリカーボネート樹脂と相溶する熱可塑性樹脂が好ましく、（メタ）アクリル樹脂がより好ましく、芳香環又はシクロオレフィンを構造中に有するメタクリル樹脂がさらにより好ましい。熱可塑性樹脂層（B）及び（C）がポリカーボネート樹脂及び上記の（メタ）アクリル樹脂を含有することが、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）の表面硬度を、ポリカーボネート樹脂のみを含む場合と比較してより高くすることができるため好ましい。
- [0061] 本発明の樹脂積層体における中間層（A）、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）の少なくとも1つの層は、本発明の効果を阻害しない範囲で、一般的に用いられる各種の添加剤をさらに含んでいてもよい。添加剤としては、例えば、安定剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤、発泡剤、滑剤、離型剤、帯電防止剤、難燃剤、離型剤、重合抑制剤、難燃助剤、補強剤、核剤、ブルーイング剤等の着色剤などが挙げられる。
- [0062] 着色剤としては、アントラキノン骨格を有する化合物、フタロシアニン骨格を有する化合物などを挙げるができる。これらの中でも、アントラキノン骨格を有する化合物が、耐熱性の観点から好ましい。
- [0063] 中間層（A）、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）の少なくとも1つの層が着色剤をさらに含む場合、各層における着色剤の含有量は、目的、着色剤の種類等に応じて適宜選択することができる。着色剤としてブルーイング剤を用いる場合、その含有量は、ブルーイング剤を含有する各層に含まれる全樹脂に基づいて、0.01～10ppm程度とすることができる。この含有量は、好ましくは0.01ppm以上、より好ましくは0.05ppm以上、さらにより好ましくは0.1ppm以上であり、また好ましくは7ppm以下、より好ましくは5ppm以下、さらにより好ましくは4ppm以下、特に好ましくは3ppm以下である。ブルーイング剤は、公知のものを適宜使用することができ、例えば、それぞれ商品名でマクロレックス（登録商標）

ブルーRR（バイエル社製）、マクロレックス（登録商標）ブルー3R（バイエル社製）、Sumiplast（登録商標）Viloet B（住化ケムテックス社製）及びポリシンスレン（登録商標）ブルーRLS（クラリアント社製）、Diaresin Violet D、Diaresin Blue G、Diaresin Blue N（以上、三菱化学株式会社製）が挙げられる。

[0064] 紫外線吸収剤としては、特に限定されず、従来公知の種々の紫外線吸収剤を使用してよい。例えば、200～320nm又は320～400nmに吸収極大を有する紫外線吸収剤が挙げられる。具体的には、トリアジン系紫外線吸収剤、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤、ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤、ベンゾエート系紫外線吸収剤、シアノアクリレート系紫外線吸収剤が挙げられる。紫外線吸収剤として、これらの紫外線吸収剤の1種を単独で、又は、2種以上を組み合わせて使用してよい。200～320nmに吸収極大を有する少なくとも1種の紫外線吸収剤と、320～400nmに吸収極大を有する少なくとも1種の紫外線吸収剤とを併用することも、より効果的に紫外線によるダメージを防御できる観点から好ましい。紫外線吸収剤として市販品を使用してもよく、例えばケミプロ化成株式会社製の「Kemisorb102」（2,4-ビス（2,4-ジメチルフェニル）-6-（2-ヒドロキシ-4-N-オクチルオキシフェニル）-1,3,5-トリアジン）（吸光度0.1）、株式会社ADEKA製の「アデカスタブLA-F70」（2,4,6-トリス（2-ヒドロキシ-4-ヘキシロキシ-3-メチルフェニル）-1,3,5-トリアジン）（吸光度0.6）、「アデカスタブLA-31、LA-31RG、LA-31G」（2,2'-メチレンビス（4-（1,1,3,3-テトラメチルブチル）-6-（2H-ベンゾトリアゾール-2-イル）フェノール）（吸光度0.2））、株式会社ADEKA製の「アデカスタブLA-46」（2-（4,6-ジフェニル-1,3,5-トリアジン-2-イル）-5-（2-（2-エチルヘキサノイロキシ）エトキシ）フェノール）（吸光度0.05）又はBASFジャパン株式会社製の「チヌビン1577」（2,4-ジフェニル-6-（2-ヒドロキシ-4-ヘキ

シルオキシフェニル) - 1, 3, 5-トリアジン) (吸光度0.1)などが挙げられる。例示した紫外線吸収剤の吸光度は、380nmにおける吸光度である。これは、10mg/Lの濃度で紫外線吸収剤をクロロホルムに溶解させ、分光光度計(例えばHITACHI製分光光度計U-4100)を用いて測定することができる。

[0065] 中間層(A)、熱可塑性樹脂層(B)及び(C)の少なくとも1つの層が紫外線吸収剤をさらに含む場合、各層における紫外線吸収剤の含有量は、目的、紫外線吸収剤の種類等に応じて適宜選択してよい。例えば、紫外線吸収剤の含有量は、紫外線吸収剤を含有する各層に含まれる全樹脂に基づいて、0.005~2.0質量%程度とすることができる。紫外線吸収剤の含有量は、好ましくは0.01質量%以上、より好ましくは0.02質量%以上、さらにより好ましくは0.03質量%以上である。また、紫外線吸収剤の含有量は、好ましくは1.5質量%以下、より好ましくは1.0質量%以下である。紫外線吸収剤の含有量が上記の下限以上であることが、紫外線吸収効果を高めやすい観点から好ましく、上記の上限以下であることが、樹脂積層体の色目(例えば黄色度YI)の変化を防止しやすいため好ましい。例えば上記市販品である「アデカスタブLA-31、LA-31RG、LA-31G」を上記の量で使用することが好ましい。

[0066] 本発明の別の態様において、熱可塑性樹脂層(B)及び(C)が、ポリカーボネート樹脂層であり、各熱可塑性樹脂層に含まれる全樹脂に基づいて0.005~2.0質量%の紫外線吸収剤を含むことが、耐光性に優れる樹脂積層体を得やすいため好ましい。

[0067] 本発明の樹脂積層体は、樹脂積層体の膜厚の平均値が100~2000 μ mであり、熱可塑性樹脂層(B)及び(C)の膜厚の平均値がそれぞれ10~200 μ mであることが、本発明の樹脂積層体の反りを抑制しやすい観点から好ましい。

[0068] 本発明の樹脂積層体の膜厚の平均値は、樹脂積層体の剛性の観点から、好ましくは100 μ m以上、より好ましくは200 μ m以上、さらにより好ま

しくは300 μm 以上である。また、透明性の観点から、好ましくは2000 μm 以下、より好ましくは1500 μm 以下、さらにより好ましくは1000 μm 以下である。樹脂積層体の膜厚は、デジタルマイクロメーターにより測定される。上記測定を樹脂積層体の10点において行った平均値を膜厚の平均値とする。

[0069] 本発明の樹脂積層体において、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）の膜厚の平均値は、表面硬度を高めやすい観点から、それぞれ、好ましくは10 μm 以上、より好ましくは30 μm 以上、さらにより好ましくは50 μm 以上である。また、誘電率の観点からは、それぞれ、好ましくは200 μm 以下、より好ましくは175 μm 以下、さらにより好ましくは150 μm 以下である。熱可塑性樹脂層の膜厚の平均値の測定方法は、上記に述べたとおりである。

[0070] 本発明の樹脂積層体において、中間層（A）の膜厚の平均値は、誘電率の観点から、好ましくは100 μm 以上、より好ましくは200 μm 以上、さらにより好ましくは300 μm 以上である。また、透明性の観点から、好ましくは1500 μm 以下、より好ましくは1200 μm 以下、さらにより好ましくは1000 μm 以下である。中間層（A）の膜厚の平均値は、熱可塑性樹脂層の膜厚の平均値の測定と同様の方法で測定することができる。

[0071] 本発明の樹脂積層体は、タッチパネル等の表示装置において使用するに十分な機能を得る観点から、好ましくは3.5以上、より好ましくは4.0以上、さらにより好ましくは4.1以上の誘電率を有する。誘電率の上限値は特に限定されないが、通常20である。誘電率は、本発明の樹脂積層体の中間層（A）に含まれるフッ化ビニリデン樹脂の種類や量を調整したり、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネートなどの高誘電率化合物を添加することにより、上記の範囲に調整することができる。誘電率は、JIS K 6911：1995に準拠し、本発明の樹脂積層体を23 $^{\circ}\text{C}$ で相対湿度50%の環境下に24時間静置し、この環境下で、自動平衡ブリッジ法にて、3V、100kHzで測定した値である。測定には、市販の機器を使用してよく

、例えば、アジレント・テクノロジー株式会社製の「precision LCR meter H P4284A」を使用してよい。

[0072] 本発明の樹脂積層体は、目視で観察した場合に透明であることが好ましい。具体的には、本発明の樹脂積層体は、JIS K 7361-1:1997に準拠して測定して好ましくは85%以上、より好ましくは88%以上、さらにより好ましくは90%以上の全光線透過率(Tt)を有する。全光線透過率の上限は100%である。60℃で相対湿度90%の環境下に120時間暴露後の樹脂積層体はなお、上記の範囲の全光線透過率を有することが好ましい。

[0073] 本発明の樹脂積層体は、60℃で相対湿度90%の環境下に120時間暴露後の樹脂積層体を用いて、JIS K 7136:2000に準拠して測定して、好ましくは2.0%以下、より好ましくは1.8%以下、さらにより好ましくは1.5%以下のヘーズ(曇価)を有する。また、本発明の樹脂積層体は、60℃で相対湿度90%の環境下に120時間暴露後の樹脂積層体を用いて、JIS Z 8722:2009に従って測定して、好ましくは1.5以下、より好ましくは1.4以下、さらにより好ましくは1.3以下の黄色度(Yellow Index: YI値)を有する。上記のヘーズ及び黄色度を有する本発明の樹脂積層体は、高温高湿等の環境下で使用しても反りが生じにくいことに加えて、透明性を維持し、黄色化を抑制しやすいことから好ましい。

[0074] 本発明の樹脂積層体は、中間層(A)、熱可塑性樹脂層(B)及び(C)の他に、さらに、少なくとも1つの機能層を有してよい。機能層は、熱可塑性樹脂層(B)及び/又は(C)の、中間層(A)とは反対側の表面に存在することが好ましい。機能層としては、例えばハードコート層、反射防止層、防眩層、帯電防止層及び指紋防止層などが挙げられる。これらの機能層は、粘着剤層を介して本発明の樹脂積層体に積層されていてもよいし、コーティングにより積層されたコーティング層であってもよい。機能層として、例えば特開2013-86273号公報に記載されているような硬化被膜を用いてもよい。機能層は、例えば、ハードコート層、防眩層、帯電防止層及び

指紋防止層からなる群から選択される少なくとも1つの機能層の片面又は両面に、コート法、スパッタ法、真空蒸着法等により反射防止層がさらにコーティングされた層であってもよいし、上記少なくとも1つの機能層の片面又は両面に反射防止性のシートが貼合された層であってもよい。

[0075] 機能層の厚みは、各機能層の目的に応じて適宜選択してよいが、機能を発現しやすい観点から好ましくは1 μm 以上、より好ましくは3 μm 以上、さらにより好ましくは5 μm 以上であり、機能層の割れを防止しやすい観点から、好ましくは100 μm 以下、より好ましくは80 μm 以下、さらにより好ましくは70 μm 以下である。

[0076] 本発明の樹脂積層体は、中間層(A)を与える樹脂組成物(A)、熱可塑性樹脂層(B)及び(C)をそれぞれ与える樹脂組成物(B)及び(C)から製造することができる。なお、本明細書において、樹脂組成物(B)及び(C)は、熱可塑性樹脂層(B)及び(C)を与える樹脂を少なくとも含んでいればよく、樹脂と任意の添加剤などの2種以上の成分を含む組成物であってもよいし、単に1種類の樹脂であってもよい。

[0077] 樹脂組成物(A)は、(メタ)アクリル樹脂とフッ化ビニリデン樹脂とを、通常、混練することにより得られる。混練は、例えば、150~350°Cの温度にて、10~1000/秒の剪断速度で溶融混練する工程を含む方法により実施できる。

[0078] 溶融混練を行う際の温度は、150°C以上であることが、樹脂を十分に溶融させることができるため好ましく、350°C以下であることが、樹脂の熱分解を抑制しやすいため好ましい。さらに、溶融混練を行う際の剪断速度が10/秒以上であることが、樹脂を十分に混練しやすいため好ましく、1000/秒以下であることが、樹脂の分解を抑制しやすいため好ましい。

[0079] 各成分がより均一に混合された樹脂組成物を得るために、溶融混練は、好ましくは180~300°C、より好ましくは200~300°Cの温度で行われ、好ましくは20~700/秒、より好ましくは30~500/秒の剪断速度で行われる。

- [0080] 溶融混練に用いる機器としては、通常の混合機や混練機を用いることができる。具体的には、一軸混練機、二軸混練機、他軸押出機、ヘンシェルミキサー、バンバリーミキサー、ニーダー、ロールミルなどが挙げられる。また、剪断速度を上記範囲内で大きくする場合には、高剪断加工装置等を使用してもよい。
- [0081] 樹脂組成物（B）及び（C）も、樹脂組成物（A）と同様にして、例えば上記の温度及び剪断速度下での溶融混練等により製造することができる。また、例えば熱可塑性樹脂層（B）及び（C）が1種類の熱可塑性樹脂を含む場合、予め溶融混練することなく、後述する溶融押出を行い樹脂積層体を製造してもよい。
- [0082] 中間層（A）、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）が添加剤を含有する場合、添加剤は各層に含まれる樹脂にあらかじめ含まれていてもよく、樹脂の溶融混練の際に添加してもよく、樹脂を溶融混練後に添加してもよく、樹脂組成物を用いて樹脂積層体を作製する際に添加してもよい。
- [0083] 中間層（A）と、中間層（A）の両側にそれぞれ存在する熱可塑性樹脂層（B）及び（C）とを少なくとも有する本発明の樹脂積層体は、例えば溶融押出成形法、溶液流延製膜法、熱プレス法、射出成形法などにより樹脂組成物（A）～（C）から各層（A）～（C）を別々に作製し、これらを例えば粘着剤や接着剤を介して貼合することにより製造してもよいし、樹脂組成物（A）～（C）を溶融共押出成形により積層一体化させることにより製造してもよい。貼合により樹脂積層体を製造する場合、各層の作製に射出成形法及び溶融押出成形法を用いることが好ましく、溶融押出成形法を用いることがより好ましい。本発明の樹脂積層体は、樹脂組成物（A）～（C）を溶融共押出成形することにより製造することが、貼合により製造された樹脂積層体と比較して、通常、二次成形しやすい樹脂積層体が得られるため好ましい。
- [0084] 溶融共押出成形は、例えば、樹脂組成物（A）と樹脂組成物（B）及び（C）とを、2基又は3基の一軸又は二軸の押出機に、別々に投入して各々溶

融混練した後、フィードブロックダイやマルチマニホールダイ等を介して、樹脂組成物（A）から形成される中間層（A）と熱可塑性樹脂層（B）及び（C）とを積層一体化し、押出す成形法である。樹脂組成物（B）及び（C）が同一の組成物である場合、1つの押出機内で溶融混練させた1つの組成物をフィードブロックダイ等を介して2つに分けて、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）を形成させてもよい。得られた樹脂積層体は、例えば、ロールユニット等により冷却、固化されることが好ましい。

[0085] 本発明の樹脂積層体は、上記のようにして製造した積層体から切り出して得た、例えば幅500～3000mm、長さ500～3000mmの大きさを有する樹脂積層体の形態で流通される。

[0086] 本発明の樹脂積層体は、さまざまな表示装置において使用することができる。表示装置とは、表示素子を有する装置であり、発光源として発光素子又は発光装置を含む。表示装置としては、液晶表示装置、有機エレクトロルミネッセンス（EL）表示装置、無機エレクトロルミネッセンス（EL）表示装置、タッチパネル表示装置、電子放出表示装置（例えば電場放出表示装置（FED）、表面電界放出表示装置（SED））、電子ペーパー（電子インクや電気泳動素子を用いた表示装置）、プラズマ表示装置、投射型表示装置（例えばグレーティングライトバルブ（GLV）表示装置、デジタルマイクロミラーデバイス（DMD）を有する表示装置）及び圧電セラミックディスプレイなどが挙げられる。液晶表示装置は、透過型液晶表示装置、半透過型液晶表示装置、反射型液晶表示装置、直視型液晶表示装置及び投写型液晶表示装置などのいずれをも含む。これらの表示装置は、2次元画像を表示する表示装置であってもよいし、3次元画像を表示する立体表示装置であってもよい。本発明の樹脂積層体はこれら表示装置において、例えば前面板又は透明電極として、好適に使用される。

[0087] 本発明の樹脂積層体をタッチパネル等における透明電極として使用する場合、本発明の樹脂積層体の少なくとも一方の表面に透明導電膜を形成させて透明導電シートを製造し、該透明導電シートから透明電極を製造することが

できる。

[0088] 本発明の樹脂積層体の少なくとも一方の表面に透明導電膜を形成させる方法としては、本発明の樹脂積層体の表面に透明導電膜を直接形成させてもよいし、予め透明導電膜が形成されたプラスチックフィルムを本発明の樹脂積層体の表面に積層させてもよい。

[0089] 予め透明導電膜が形成されたプラスチックフィルムのフィルム基材としては、透明なフィルムであって透明導電膜を形成することができる基材であれば特に限定されず、例えば、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリカーボネート、アクリル樹脂、ポリアミド、これらの混合物又は積層物等が挙げられる。また、透明導電膜を形成させる前に、表面硬さの改良、ニュートンリングの防止、帯電防止性の付与などを目的として、上記フィルムにコーティングを施しておいてもよい。

[0090] 予め透明導電膜が形成されたフィルムを本発明の樹脂積層体の表面に積層する方法は、気泡等がなく、均一で、透明なシートが得られる方法であればいかなる方法でもよい。常温、加熱、紫外線又は可視光線により硬化する接着剤を使用して積層する方法を用いてもよいし、透明な粘着テープにより貼り合わせてもよい。

[0091] 透明導電膜の成膜方法としては、真空蒸着法、スパッタリング法、CVD法、イオンプレーティング法、スプレー法等が知られており、必要とする膜厚に応じて、これらの方法を適宜用いることができる。

[0092] スパッタリング法の場合、例えば、酸化物ターゲットを用いた通常のスパッタリング法、金属ターゲットを用いた反応性スパッタリング法等が用いられる。この時、反応性ガスとして、酸素、窒素等を導入したり、オゾン添加、プラズマ照射、イオンアシスト等の手段を併用したりしてもよい。また、必要により、基板に直流、交流、高周波等のバイアスを印加してもよい。透明導電膜に使用する透明導電性の金属酸化物としては、酸化インジウム、酸化スズ、酸化亜鉛、インジウムスズ複合酸化物、スズ-アンチモン複合酸化物、亜鉛-アルミニウム複合酸化物、インジウム-亜鉛複合酸化物等が挙

げられる。これらのうち、環境安定性や回路加工性の観点から、インジウム—スズ複合酸化物（ITO）が好適である。

[0093] また、透明導電膜を形成する方法として、透明導電性被膜を形成することができる各種の導電性高分子を含むコーティング剤を本発明の樹脂積層体の表面に塗布し、熱又は紫外線等の電離放射線を照射することによりコーティングを硬化させる方法等も適用できる。導電性高分子としては、ポリチオフェン、ポリアニリン、ポリピロール等が知られており、これらの導電性高分子を用いることができる。

[0094] 透明導電膜の厚さとしては、特に限定されるものではないが、透明導電性の金属酸化物を使用する場合、通常50～2000 Å、好ましくは70～000 Åである。この範囲であれば導電性及び透明性の両方に優れる。

[0095] 透明導電シートの厚さは特に限定されるものではなく、ディスプレイの製品仕様の求めに応じた最適の厚さを選択することができる。

[0096] 本発明の樹脂積層体をディスプレイパネル面板として使用し、本発明の樹脂積層体から製造した透明導電シートをタッチスクリーン等の透明電極として使用し、タッチセンサーパネルを製造することができる。具体的には、本発明の樹脂積層体をタッチスクリーン用ウインドウシートとして使用し、透明導電シートを抵抗膜方式や静電容量方式のタッチスクリーンの電極基板として使用することができる。このタッチスクリーンを液晶表示装置や有機EL表示装置等の前面に配置することでタッチスクリーン機能を有する外付型のタッチセンサーパネルが得られる。

[0097] 本発明は、本発明の樹脂積層体を含む表示装置も提供する。本発明の表示装置は、例えば上記において述べた表示装置であり得る。

[0098] 本発明は、本発明の樹脂積層体及び偏光板が積層された樹脂積層体付き偏光板、ならびに、該樹脂積層体付き偏光板を含む表示装置も提供する。本発明の樹脂積層体付き偏光板において、本発明の樹脂積層体は、例えば接着剤及び粘着剤などの光学粘接着剤を介して偏光板に積層されている。接着剤又は粘着剤としては、適宜公知のものを使用すればよい。

[0099] 図2に、本発明の樹脂積層体を含む液晶表示装置の好ましい一形態を断面模式図で示す。本発明の樹脂積層体10は、光学粘着層12を介して、偏光板11に積層され、この積層体は、液晶セル13の視認側に配置され得る。液晶セル13の背面側には、通常、偏光板11が配置される。液晶表示装置14は、このような部材から構成される。なお、図2は、液晶表示装置の一例であり、本発明の表示装置はこの構成に限られるものではない。

実施例

[0100] 以下、実施例及び比較例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0101] [ビカット軟化温度]

JIS K 7206 : 1999「プラスチック-熱可塑性プラスチック-ビカット軟化温度(VST)試験方法」に規定のB50法に準拠して測定した。ビカット軟化温度は、ヒートディストーションテスター〔株式会社安田精機製作所製の“148-6連型”〕で測定した。その際の試験片は、各原料を3mm厚にプレス成形して測定を行った。

[0102] [アルカリ金属の含有量]

誘導結合プラズマ質量分析法により測定した。

[0103] [MFR]

JIS K 7210 : 1999「プラスチック-熱可塑性プラスチックのメルトマスフローレイト(MFR)及びメルトボリュームフローレイト(MVR)の試験方法」に規定される方法に準拠して測定した。ポリ(メタクリル酸メチル)系の材料については、温度230℃及び荷重3.80kg(37.3N)の条件で測定することが、このJISに規定されている。

[0104] [MVR]

ポリカーボネート系樹脂の材料については、JIS K 7210に準拠している株式会社東洋精機製作所製「セミオートメルトインデックス2A」で、1.2kg荷重下、300℃の条件にて測定した。

[0105] [全光線透過率及びヘーズ]

J I S K 7 3 6 1 - 1 : 1 9 9 7 「プラスチック-透明材料の全光線透過率の試験方法-第1部:シングルビーム法」に準拠したヘーズ透過率計(株式会社村上色彩技術研究所製「HR-100」)で測定した。

[0106] [YI値]

日本電色工業株式会社製の「Spectrophotometer SQ2000」で測定した。

[0107] [膜厚の平均値]

樹脂積層体の膜厚は、デジタルマイクロメーターによって測定した。上記測定を10点において行った平均値を樹脂積層体の膜厚の平均値とした。

中間層(A)、熱可塑性樹脂層(B)及び(C)の各層の膜厚の測定は、樹脂積層体を面方向に対して垂直に切断し、断面をサンドペーパーを用いて研磨した後、マイクロ・スクエア製マイクロスコープで観察することによって測定した。上記測定を10点において行った平均値を各層の膜厚の平均値とした。

[0108] [樹脂積層体における熱可塑性樹脂層(B)及び(C)の複屈折(複屈折I)]

樹脂積層体を積層面に垂直方向に切断し、熱可塑性樹脂層表面において短辺600 μ m、長辺8mmの大きさを有し、樹脂積層体の膜厚である厚みを有する直方体を得た。これを、断面が上に向くようにガラス上に固定し、位相差測定用試料を得た。固定はエポキシ系接着剤を用いて行った。得られた試料を、測定したい層が測定光の入射側に向くように自動複屈折計(王子計測株式会社製「KOBRA-CCD」)にセットし、温度23 \pm 2 $^{\circ}$ C、湿度50 \pm 5%において、波長590nmの位相差(R)を測定した。得られた位相差を用いて、次の式から複屈折(λ)を算出した。このようにして算出した複屈折を複屈折(I)とする。

$$\lambda = R / L$$

[式中、 λ は複屈折を表し、Rは位相差を表し、Lは位相差測定用試料の短辺の長さ(nm)を表す。]

[0109] [熱可塑性樹脂層(B)及び(C)のピカット軟化温度より25 $^{\circ}$ C低い温度

で4時間のアニール処理後の樹脂積層体における熱可塑性樹脂層（B）及び（C）の複屈折（複屈折 I_1 ）]

成形時の歪みによる影響を除くために、樹脂積層体を熱可塑性樹脂層（B）及び（C）のピカット軟化温度より25℃低い温度に設定したオーブン中に4時間放置し、アニール処理を行い、成形時の歪みが除去された複屈折（ I_1 ）測定用の樹脂積層体を得た。得られた樹脂積層体を用いて、上記複屈折（ I_1 ）の測定と同様の手法にて位相差を測定し、上記の式に代入して複屈折を算出した。このようにして算出した複屈折を複屈折（ I_1 ）とする。なお、熱可塑性樹脂層（B）及び（C）のピカット軟化温度が異なる場合は、高い方のピカット軟化温度よりも25℃低い温度でアニール処理を実施した。

[0110] [反りの評価]

作成したシート状の樹脂積層体を100×56mmの大きさにカットし反り評価用試料を調製した。該試料を、温度60℃、相対湿度90%の恒温恒湿機に120時間静置し、その前後において反りの変化を評価した。評価は、試料の4端部をキーエンス社製高精度CCDマイクロメーターにて観察し、生じた反りの高さを測定し、4端部の反りの高さの平均値を算出して行った。

[0111] [製造例1]

メタクリル酸メチル97.7質量部及びアクリル酸メチル2.3質量部を混合し、連鎖移動剤（オクチルメルカプタン）0.05質量部及び離型剤（ステアリルアルコール）0.1質量部を加えて単量体混合液を得た。また、メタクリル酸メチル100質量部に重合開始剤〔1,1-ジ（tert-ブチルパーオキシ）3,3,5-トリメチルシクロヘキサン〕0.036質量部を加えて開始剤混合液を得た。単量体混合液と開始剤混合液との流量比が8.8:1になるように完全混合型重合反応器に連続供給し、平均滞留時間20分、温度175℃で平均重合率54%まで重合し、部分重合物を得た。得られた部分重合物を200℃に加熱してベント付き脱揮押出機へ導き、240℃で未反

応の単量体をベントから脱揮すると共に、脱揮後の重合体は熔融状態で押出し、水冷後、裁断してペレット状のメタクリル樹脂（i）を得た。

[0112] 得られたペレット状のメタクリル樹脂組成物を、以下に示す条件で熱分解ガスクロマトグラフィーにより分析し、メタクリル酸メチル及びアクリル酸エステルに対応する各ピーク面積を測定した。その結果、メタクリル樹脂（i）は、メタクリル酸メチルに由来する構造単位が97.0質量%であり、アクリル酸メチルに由来する構造単位が3.0質量%であった。

[0113] [熱分解ガスクロマトグラフィーによる構造単位の含有量]

(熱分解条件)

試料調製：メタクリル樹脂組成物を精秤（目安2～3mg）し、樋状にした金属セルの中央部に入れ、金属セルを畳んで両端を軽くペンチで押さえて封入した。

熱分解装置：CURIE POINT PYROLYZER JHP-22（日本分析工業株式会社製）

金属セル：Pyrofoil F590（日本分析工業株式会社製）

恒温槽の設定温度：200℃

保温パイプの設定温度：250℃

熱分解温度：590℃

熱分解時間：5秒

[0114] (ガスクロマトグラフィー分析条件)

ガスクロマトグラフィー分析装置：GC-14B（株式会社島津製作所製）

検出方法：FID

カラム：7G 3.2m×3.1mmφ（株式会社島津製作所製）

充填剤：FAL-M（株式会社島津製作所製）

キャリアーガス：Air/N₂/H₂=50/100/50（kPa）、80ml/分

カラムの昇温条件：100℃で15分保持後、10℃/分で150℃まで昇温し、150℃で14分保持

INJ温度：200℃

DET 温度：200℃

[0115] 上記熱分解条件でメタクリル樹脂組成物を熱分解させ、発生した分解生成物を上記ガスクロマトグラフィー分析条件で測定を行った時に検出されるメタクリル酸メチルに対応するピーク面積（ a_1 ）及びアクリル酸エステルに対応するピーク面積（ b_1 ）を測定した。そして、これらピーク面積からピーク面積比 A （ $= b_1 / a_1$ ）を求めた。一方、メタクリル酸メチル単位に対するアクリル酸エステル単位の重量比が W_0 （既知）であるメタクリル樹脂の標準品を上記熱分解条件で熱分解させ、発生した分解生成物を上記ガスクロマトグラフィー分析条件で測定を行った時に検出されるメタクリル酸メチルに対応するピーク面積（ a_0 ）及びアクリル酸エステルに対応するピーク面積（ b_0 ）を測定し、これらピーク面積からピーク面積比 A_0 （ $= b_0 / a_0$ ）を求めた。そして、前記ピーク面積比 A_0 と前記重量比 W_0 とから、ファクター f （ $= W_0 / A_0$ ）を求めた。

前記ピーク面積比 A に前記ファクター f を乗じることにより、前記メタクリル樹脂組成物に含まれる共重合体におけるメタクリル酸メチル単位に対するアクリル酸エステル単位の重量比 W を求め、該重量比 W から、メタクリル酸メチル単位及びアクリル酸エステル単位の合計に対するメタクリル酸メチル単位の比率（質量％）と前記合計に対するアクリル酸エステル単位の比率（質量％）を算出した。

[0116] [製造例 2]

メタクリル酸メチルを 98.9 質量部、アクリル酸メチル 1.1 質量部、連鎖移動剤を 0.16 質量部に変更した以外は、製造例 1 と同様にしてペレット状のメタクリル樹脂 (ii) を得、構造単位の含有量を測定した。メタクリル樹脂 (ii) は、メタクリル酸メチルに由来する構造単位が 97.5 質量％であり、アクリル酸メチルに由来する構造単位が 2.5 質量％であった。

[0117] [製造例 3]

球形 3 層構造を有する平均粒子径が $0.22 \mu\text{m}$ のアクリル系ゴム粒子を、特公昭 55-27576 号公報の実施例 3 に準じて製造し、アクリル系ゴ

ム粒子 (i) として使用した。アクリル系ゴム粒子 (i) は、メタクリル酸メチルと少量のメタクリル酸アリルを用いて重合させた硬質重合体である最内層、アクリル酸ブチルを主成分としてさらにスチレン及び少量のメタクリル酸アリルを用いて重合させた弾性重合体である中間層、メタクリル酸メチルと少量のアクリル酸メチルを用いて重合させた硬質重合体である最外層を有した。なお、アクリル系ゴム粒子 (i) の平均粒子径は、アクリル系ゴム粒子をメタクリル樹脂と混合してフィルム化し、フィルム断面において酸化ルテニウムを用いて弾性重合体 (中間層) を染色し、電子顕微鏡で観察して、染色された部分の直径を測定して求めた。

メタクリル樹脂 (i) のペレット 65 部と、上記アクリル系ゴム粒子 (i) 35 部とを、スーパーミキサーで混合し、二軸押出機で熔融混練してペレットとした。

[0118] 製造例 1～3 で得たメタクリル樹脂 (i) ～ (iii) の物性を表 1 に示す。

[0119] [表1]

	Mw	MFR [g/10分]	VST [°C]	Na [ppm]	K [ppm]
メタクリル樹脂 (i)	180,000	0.5	106	<0.01	<0.01
メタクリル樹脂 (ii)	120,000	2.0	110	<0.01	<0.01
製造例 3 で得た混合物	—	1.8	105	30	30

[0120] [製造例 4]

ブルーイング剤をマスターバッチ (MB) 化するために、製造例 1 で得たメタクリル樹脂 (i) 99.99 重量部と、着色剤 0.01 重量部とをドライブレンドし、40mmφ一軸押出機 (田辺プラスチック機械株式会社製) で、設定温度 250～260°C で熔融混合させ、着色されたマスターバッチペレット (MB (i)) を得た。着色剤としては、ブルーイング剤 (住化ケムテックス株式会社製の「Sumiplast (商標登録) Violet B」) を使用した。

[0121] 実施例及び比較例において、表 2 に示す物性を有する市販のフッ化ビニリデン樹脂を使用した。

フッ化ビニリデン樹脂 (i) : 懸濁重合により製造されたポリフッ化ビニリ

デン

フッ化ビニリデン樹脂 (i i) : 乳化重合により製造されたポリフッ化ビニリデン

[0122] [表2]

	Mw	MFR [g/10分]	Na [ppm]	K [ppm]
フッ化ビニリデン樹脂 (i)	200,000	30	0.3	0.05
フッ化ビニリデン樹脂 (i i)	190,000	29	80	100

[0123] フッ化ビニリデン樹脂の重量平均分子量 (Mw) は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) で測定した。ポリスチレンを標準試薬として使用し、溶出時間と分子量から検量線を作成し、各樹脂の重量平均分子量を測定した。具体的には、樹脂 40 mg を N-メチルピロリドン (NMP) 溶媒 20 ml に溶解させ、測定試料を作製した。測定装置として、東ソー株式会社製のカラムである「TSKgel SuperHM-H」2本と、「SuperH2500」1本とを直列に並べて設置し、検出器に RI 検出器を採用したものをを用いた。

[0124] 実施例及び比較例において、次に示す市販品をポリカーボネート樹脂として使用した。樹脂の物性を表3に示す。

ポリカーボネート樹脂 (i) : 住化スタイロンポリカーボネート株式会社製
「カリバー (登録商標) 301-30」

[0125] [表3]

	Mw	MVR [cm ³ /10分]	VST [°C]
ポリカーボネート樹脂 (i)	32,200	30	148

[0126] ポリカーボネート樹脂の重量平均分子量は GPC で測定した。分子量分布が狭く分子量が既知の昭和電気株式会社製のメタクリル樹脂を標準試薬として使用し、溶出時間と分子量から検量線を作成し、重量平均分子量を測定した。具体的には、樹脂 40 mg をテトラヒドロフラン (THF) 溶媒 20 ml に溶解させ、測定試料を作製した。測定装置として、東ソー株式会社製のカラムである「TSKgel SuperHM-H」2本と、「SuperH2500」1本とを直列に

並べて設置し、検出器にR1検出器を採用したものをを用いた。

[0127] [実施例1～3、比較例1～6の樹脂積層体の製造]

表1及び2に示すメタクリル樹脂及びフッ化ビニリデン樹脂、ならびに、製造例4で得たマスターバッチペレットMB(i)を、表4に示す割合で混合し、中間層(A)を形成するための樹脂組成物(A)を得た。熱可塑性樹脂層(B)及び(C)を形成するための樹脂組成物(B)及び(C)としては、表1に示すメタクリル樹脂、製造例3で得た混合物又は表3に示すポリカーボネート樹脂を使用した。これらの樹脂組成物から、図1に示す装置を用いて樹脂積層体を製造した。具体的には、樹脂組成物(A)を65mmφ一軸押出機2〔東芝機械株式会社製〕で、樹脂組成物(B)及び(C)を45mmφ一軸押出機1及び3〔日立造船株式会社製〕で、それぞれ熔融させた。次いで、これらを設定温度230～270℃の3種3層分配型フィードブロック4に供給し3層構成となるように分配した後、マルチマニホールド型ダイス5〔日立造船株式会社製、2種3層分配〕から押し出してB層/A層/C層で表される構成となるように積層し、フィルム状の熔融樹脂6を得た。得られたフィルム状の熔融樹脂6を、対向配置した第1冷却ロール7(直径350mm)と第2冷却ロール8(直径450mm)との間に挟み込み、次いで第2ロール8に巻き掛けながら第2ロール8と第3ロール9(直径350mm)との間に挟み込んだ後、第3冷却ロール9に巻き掛けて、成形・冷却し、各層が表4に示す膜厚の平均値を有する3層構成の樹脂積層体10を得た。得られた樹脂積層体10は、いずれも約800μmの総膜厚を有し、目視で観察したところ無色透明であった。

[0128]

[表4]

		実施例			比較例					
		1	2	3	1	2	3	4	5	
中間層 A	メタクリル樹脂(i)	39	39	39	39	39	39	39	39	
	フッ化ビニリデン樹脂(i)	60	60	-	60	60	60	60	60	
	フッ化ビニリデン樹脂(i i)	-	-	60	-	-	-	-	-	
	MB(i)	1	1	1	1	1	1	1	1	
熱可塑性樹脂層	B	メタクリル樹脂(i i)	100	-	100	100	100	-	100	100
		ポリカーボネート樹脂(i)	-	100	-	-	-	100	-	-
	C	メタクリル樹脂(i i)	100	-	100	100	100	-	-	-
		メタクリル樹脂(i i i)	-	-	-	-	-	-	100	-
		ポリカーボネート樹脂(i)	-	100	-	-	-	100	-	100
膜厚の 平均値 [μm]	中間層(A)	600	700	600	600	600	700	700	700	
	熱可塑性樹脂層(B)	95	45	95	110	90	40	45	46	
	熱可塑性樹脂層(C)	101	50	100	70	100	61	50	51	

[0129] 表5に樹脂積層体作製時の各冷却ロールの温度、引き取り速度、ダイから吐出した樹脂を非接触温度計で測定した吐出樹脂温度を示す。

[0130] [表5]

	冷却ロール温度 [°C]			引き取り速度 [m/分]	吐出樹脂温度 [°C]
	1ロール	2ロール	3ロール		
実施例1	100	96	95	3.1	251
実施例2	102	97	96	3.1	253
実施例3	101	96	95	3.2	250
比較例1	100	97	95	3.1	251
比較例2	70	60	50	2.7	251
比較例3	101	97	95	3.3	253
比較例4	98	96	94	3.2	248
比較例5	105	100	97	3.2	255

[0131] 実施例1～3及び比較例1～5の樹脂積層体の熱可塑性樹脂層(B)及び(C)について、 ΔL 、 $\Delta \lambda_B$ 、 $\Delta \lambda_C$ 、 $\Delta \lambda_{BC}$ 及び ΔT を測定した結果を次の表6に示す。

[0132]

[表6]

	実施例			比較例				
	1	2	3	1	2	3	4	5
$\Delta L (= L_B - L_C)$ [μm]	6	5	5	40	10	21	5	6
λ'_B [$\times 10^{-4}$]	3.50	8.91	3.51	3.55	4.00	8.95	3.48	3.51
λ_B [$\times 10^{-4}$]	2.09	2.95	2.09	2.09	2.09	2.96	2.09	2.09
λ'_C [$\times 10^{-4}$]	3.41	8.79	3.42	3.46	3.91	8.79	3.50	8.80
λ_C [$\times 10^{-4}$]	2.09	2.69	2.09	2.09	2.20	2.69	2.20	2.70
$\Delta \lambda_B (= \lambda'_B - \lambda_B)$ [$\times 10^{-4}$]	1.41	5.96	1.42	1.46	1.91	5.99	1.38	1.42
$\Delta \lambda_C (= \lambda'_C - \lambda_C)$ [$\times 10^{-4}$]	1.32	6.10	1.33	1.37	1.71	6.10	1.30	6.10
$\Delta \lambda_{BC} (= \Delta \lambda_B - \Delta \lambda_C)$ [$\times 10^{-4}$]	0.09	0.14	0.09	0.09	0.20	0.11	0.08	4.68
T_B [$^{\circ}C$]	110	148	110	110	110	148	110	110
T_C [$^{\circ}C$]	110	148	110	110	110	148	105	148
$\Delta T (= T_B - T_C)$ [$^{\circ}C$]	0	0	0	0	0	0	5	38

[0133] 実施例1～3及び比較例1～5の樹脂積層体において、中間層(A)におけるアルカリ金属(Na及びK)含量は、実施例1、2及び比較例1～5では0.3ppmであり、実施例3では100ppmであった。

[0134] 実施例1～3及び比較例1～5の樹脂積層体の誘電率は、実施例1及び比較例2、3及び5では5.2、実施例2では5.3、比較例1及び4では5.1、実施例3では4.9であった。いずれの樹脂積層体もタッチパネル等の表示装置において使用するに十分な誘電率を有することが確認された。

[0135] 実施例1～3及び比較例1～5の樹脂積層体を用いて、全光線透過率(Tt)、ヘーズ(Haze)及び反りの評価を行った。得られた結果を表7に示す。さらに、実施例1～3及び比較例1～5の樹脂積層体を60℃で相対湿度90%の環境下に120時間暴露して、耐久試験後の樹脂積層体についても同様に反りの評価を行った。耐久試験後の結果も表7に示す。

[0136]

[表7]

		実施例			比較例				
		1	2	3	1	2	3	4	5
耐久試験前	T t [%]	91.6	90.2	91.6	91.6	91.5	90.3	91.5	91.0
	H a z e [%]	0.2	0.3	0.2	0.2	0.2	0.3	0.3	0.2
	反り [mm]	0.1	0.1	0.1	2.0	0.5	0.6	0.2	0.6
耐久試験後	T t [%]	91.2	90.0	91.2	91.2	91.1	90.0	91.0	90.2
	H a z e [%]	0.4	0.4	0.4	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
	反り [mm]	0.2	0.2	0.2	2.8	1.0	1.2	1.5	3.0

[0137] 実施例1～3に示す本発明の樹脂積層体は高い透明性を有すると共に反りが生じにくいことがわかった。さらに、実施例1～3に示す本発明の樹脂積層体は高温高湿条件下での耐久試験後であっても反りが生じにくいものであった。

符号の説明

- [0138]
- 1 一軸押出機（樹脂組成物Bの溶融物を押し出す）
 - 2 一軸押出機（樹脂組成物Aの溶融物を押し出す）
 - 3 一軸押出機（樹脂組成物Cの溶融物を押し出す）
 - 4 フィードブロック
 - 5 マルチマニホールド型ダイス
 - 6 フィルム状の溶融樹脂
 - 7 第1冷却ロール
 - 8 第2冷却ロール
 - 9 第3冷却ロール
 - 10 樹脂積層体
 - 10A 中間層（A）
 - 10B 熱可塑性樹脂層（B）
 - 10C 熱可塑性樹脂層（C）
 - 11 偏光板
 - 12 光学粘着層
 - 13 液晶セル

1 4 液晶表示装置

請求の範囲

[請求項1] 中間層 (A) と該中間層 (A) の両側にそれぞれ存在する熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) とを少なくとも有する樹脂積層体であって、
 該中間層 (A) は、該中間層 (A) に含まれる全樹脂に基づいて、
 10～90質量%の(メタ)アクリル樹脂及び90～10質量%のフッ化ビニリデン樹脂を含み、該(メタ)アクリル樹脂の重量平均分子量 (Mw) は100,000～300,000であり、
 該熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) が以下の関係を満たす、樹脂積層体。

$$\Delta L = |L_B - L_C| \leq 20 \mu m$$

$$\Delta \lambda_{BC} = |\Delta \lambda_B - \Delta \lambda_C| \leq 0.19 \times 10^{-4}$$

$$\Delta T = |T_B - T_C| \leq 4^\circ C$$

[式中、 L_B 及び L_C は、それぞれ、熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) の膜厚の平均値を表し、 $\Delta \lambda_B$ 及び $\Delta \lambda_C$ はそれぞれ次の式で表され、

$$\Delta \lambda_B = |\lambda'_B - \lambda_B|$$

$$\Delta \lambda_C = |\lambda'_C - \lambda_C|$$

上記式中、 λ'_B 及び λ'_C は、それぞれ、樹脂積層体における熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) について測定した複屈折 (I) を表し、 λ_B 及び λ_C は、それぞれ、熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) のピカット軟化温度より25℃低い温度で4時間のアニール処理後の樹脂積層体における熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) について測定した複屈折 (II) を表し、 T_B 及び T_C は、それぞれ、熱可塑性樹脂層 (B) 及び (C) のピカット軟化温度を表す。]

[請求項2] 中間層 (A) は、該中間層 (A) に含まれる全樹脂に基づいて、35～45質量%の(メタ)アクリル樹脂及び65～55質量%のフッ化ビニリデン樹脂を含む、請求項1に記載の樹脂積層体。

[請求項3] 中間層 (A) におけるアルカリ金属の含有量が、該中間層 (A) に

含まれる全樹脂に基づいて50ppm以下である、請求項1又は2に記載の樹脂積層体。

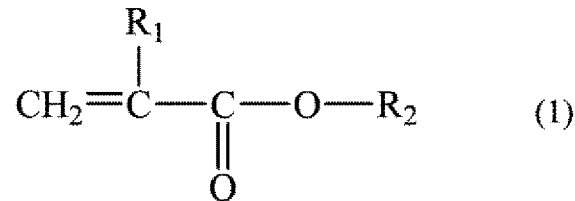
[請求項4]

(メタ)アクリル樹脂が、

(a1)メタクリル酸メチルの単独重合体、及び／又は

(a2)重合体を構成する全構造単位に基づいて50～99.9質量%のメタクリル酸メチルに由来する構造単位、及び、0.1～50質量%の式(1)で示される(メタ)アクリル酸エステルに由来する少なくとも1つの構造単位を含む共重合体である、請求項1～3のいずれかに記載の樹脂積層体。

[化1]



[式中、R₁は水素原子又はメチル基を表し、R₁が水素原子のときR₂は炭素数1～8のアルキル基を表し、R₁がメチル基のときR₂は炭素数2～8のアルキル基を表す。]

[請求項5]

フッ化ビニリデン樹脂はポリフッ化ビニリデンである、請求項1～4のいずれかに記載の樹脂積層体。

[請求項6]

フッ化ビニリデン樹脂のメルトマスフローレイトは、3.8kg荷重及び230℃の条件で測定して、0.1～40g/10分である、請求項1～5のいずれかに記載の樹脂積層体。

[請求項7]

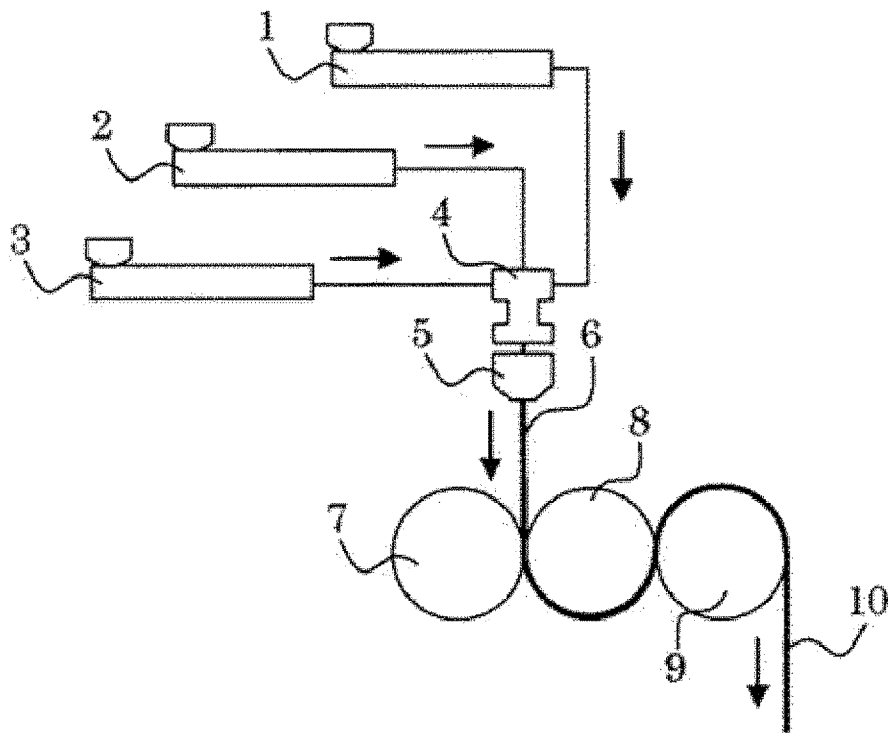
樹脂積層体の膜厚の平均値が100～2000μmであり、熱可塑性樹脂層(B)及び(C)の膜厚の平均値がそれぞれ10～200μmである請求項1～6のいずれかに記載の樹脂積層体。

[請求項8]

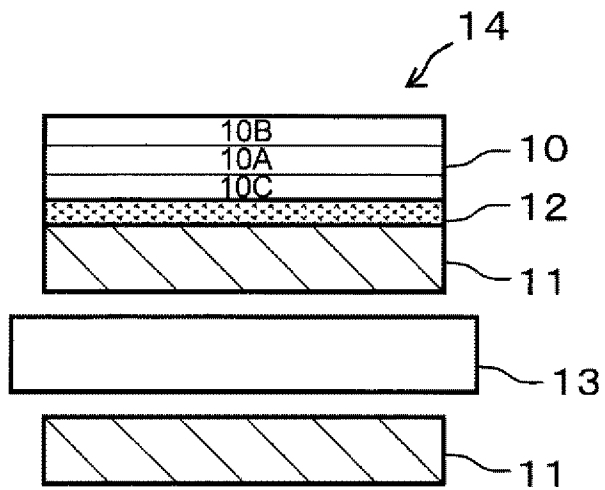
熱可塑性樹脂層(B)及び(C)に含まれる熱可塑性樹脂のピカット軟化温度がそれぞれ100～160℃である、請求項1～7のいずれかに記載の樹脂積層体。

- [請求項9] 熱可塑性樹脂層（B）及び（C）は（メタ）アクリル樹脂層又はポリカーボネート樹脂層である、請求項1～8のいずれかに記載の樹脂積層体。
- [請求項10] 熱可塑性樹脂層（B）及び（C）はポリカーボネート樹脂層であり、それぞれの熱可塑性樹脂層に含まれる全樹脂に基づいて0.005～2.0質量%の紫外線吸収剤を含む、請求項1～9のいずれかに記載の樹脂積層体。
- [請求項11] 熱可塑性樹脂層（B）及び（C）は、それぞれの熱可塑性樹脂層に含まれる全樹脂に基づいて50質量%以上の（メタ）アクリル樹脂を含む、請求項1～9のいずれかに記載の樹脂積層体。
- [請求項12] 熱可塑性樹脂層（B）及び（C）に含まれる（メタ）アクリル樹脂の重量平均分子量が50,000～300,000である、請求項11に記載の樹脂積層体。
- [請求項13] 請求項1～12のいずれかに記載の樹脂積層体を含む表示装置。
- [請求項14] 請求項1～12のいずれかに記載の樹脂積層体及び偏光板が積層された樹脂積層体付き偏光板。
- [請求項15] 請求項14に記載の樹脂積層体付き偏光板を含む表示装置。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/019004

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
B32B27/30(2006.01)i, G02B5/30(2006.01)i, G02F1/1333(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
B32B1/00-43/00, B29C47/00-47/96, G02B5/30, G02F1/1333, G02F1/1335-1/13363

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2013-244604 A (Meihan Shinku Kogyo Co., Ltd.), 09 December 2013 (09.12.2013), claims; paragraphs [0002], [0011] to [0017], [0025], [0042] to [0049], [0079] to [0082]; fig. 1 (Family: none)	1-15

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 06 July 2017 (06.07.17)	Date of mailing of the international search report 18 July 2017 (18.07.17)
--	---

Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.
--	---

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/019004

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2008-535700 A (Bayer MaterialScience AG.), 04 September 2008 (04.09.2008), paragraph [0099] & US 2006/0234061 A1 paragraph [0099] & WO 2006/108520 A1 & EP 1874856 A1 & DE 102005017023 A & KR 10-2008-0004595 A & CN 101198649 A & BR PI0608912 A & IL 186584 A & AT 516324 T & AU 2006233568 A & MX 2007012566 A & RU 2007141516 A & ES 2367656 T & TW 200708397 A	1-15
Y	WO 2011/142453 A1 (Mitsubishi Rayon Co., Ltd.), 17 November 2011 (17.11.2011), paragraph [0078] & JP 5148754 B2 & US 2013/0202847 A1 paragraph [0102] & EP 2570452 A1 & CN 102892816 A & KR 10-2013-0008087 A	1-15
Y	JP 2012-051311 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 15 March 2012 (15.03.2012), claims; paragraphs [0001], [0008], [0032], [0048], [0052] to [0076]; examples 3, 4 & KR 10-2012-0023583 A	1-15

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. B32B27/30(2006.01)i, G02B5/30(2006.01)i, G02F1/1333(2006.01)i

B. 調査を行った分野
 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. B32B1/00-43/00, B29C47/00-47/96, G02B5/30, G02F1/1333, G02F1/1335-1/13363

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2013-244604 A (名阪真空工業株式会社) 2013.12.09, 【特許請求の範囲】, 【0002】, 【0011】 - 【0017】, 【0025】, 【0042】 - 【0049】, 【0079】 - 【0082】, 【図1】 (ファミリーなし)	1-15
Y	JP 2008-535700 A (バイエル・マテリアルサイエンス・アクチュンゲゼルシャフト) 2008.09.04, 【0099】 & US 2006/0234061 A1, [0099] & WO 2006/108520 A1 & EP 1874856 A1 & DE 102005017023 A & KR 10-2008-0004595 A & CN 101198649 A & BR PI0608912 A & IL 186584 A & AT 516324 T & AU 2006233568 A & MX 2007012566 A & RU 2007141516	1-15

☑ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー	の日の後に公表された文献
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)	「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日 06.07.2017	国際調査報告の発送日 18.07.2017
--------------------------	--------------------------

国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 深谷 陽子 電話番号 03-3581-1101 内線 3474	4 S	4 5 1 6
--	--	-----	---------

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
	A & ES 2367656 T & TW 200708397 A	
Y	WO 2011/142453 A1 (三菱レイヨン株式会社) 2011. 11. 17, [0078] & JP 5148754 B2 & US 2013/0202847 A1, [0102] & EP 2570452 A1 & CN 102892816 A & KR 10-2013-0008087 A	1-15
Y	JP 2012-051311 A (住友化学株式会社) 2012. 03. 15, 【特許請求の範囲】, 【0001】, 【0008】, 【0032】, 【0048】, 【0052】 - 【0076】, 実施例 3, 実施例 4 & KR 10-2012-0023583 A	1-15